

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

DEGUSSA AG
Intellectual Property Management
Patente und Marken
Standort Wolfgang
Postfach 13 45
63403 Hanau
ALLEMAGNE

Date of mailing (day/month/year) 23 August 2001 (23.08.01)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference 990040 CY	
International application No. PCT/EP00/02013	International filing date (day/month/year) 08 March 2000 (08.03.00)

1. The following indications appeared on record concerning:		
<input checked="" type="checkbox"/> the applicant	<input checked="" type="checkbox"/> the inventor	<input type="checkbox"/> the agent <input type="checkbox"/> the common representative
Name and Address VANHEERTUM, Rudolf Ostring 35 D-63796 Kahl Germany	State of Nationality BE	State of Residence DE
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:		
<input type="checkbox"/> the person	<input type="checkbox"/> the name	<input checked="" type="checkbox"/> the address <input type="checkbox"/> the nationality <input checked="" type="checkbox"/> the residence
Name and Address VANHEERTUM, Rudolf Antoinettalei 1 B-2930 Brasschaat Belgium	State of Nationality BE	State of Residence BE
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary:		
4. A copy of this notification has been sent to:		
<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:	

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer N. Wagner
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
United States Patent and Trademark
Office
Box PCT
Washington, D.C.20231
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing:

02 November 2000 (02.11.00)

International application No.:

PCT/EP00/02013

Applicant's or agent's file reference:

990040 CY

International filing date:

08 March 2000 (08.03.00)

Priority date:

22 April 1999 (22.04.99)

Applicant:

BÖRNER, Walter et al

1. The designated Office is hereby notified of its election made:



in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:

30 August 2000 (30.08.00)



in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer:

J. Zahra

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 990040 CY	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/02013	International filing date (<i>day/month/year</i>) 08 March 2000 (08.03.00)	Priority date (<i>day/month/year</i>) 22 April 1999 (22.04.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07D 251/28		
Applicant DEGUSSA AG		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>4</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

Date of submission of the demand 30 August 2000 (30.08.00)	Date of completion of this report 09 April 2001 (09.04.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/02013

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

- ☒ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1-12, as originally filed,
 pages _____, filed with the demand,
 pages _____, filed with the letter of _____,
 pages _____, filed with the letter of _____.
- ☒ the claims, Nos. 1-5, as originally filed,
 Nos. _____, as amended under Article 19,
 Nos. _____, filed with the demand,
 Nos. _____, filed with the letter of _____,
 Nos. _____, filed with the letter of _____.
- ☐ the drawings, sheets/fig _____, as originally filed,
 sheets/fig _____, filed with the demand,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1 - 5	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1 - 5	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1 - 5	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

The following search report citations are regarded as relevant:

D1: US-A-3 312 697 (J. RIETHMANN) 4 April 1967 (1967-04-04) mentioned in the application

D2: US-A-3 707 544 (SURYANARAYANA) 26 December 1972 (1972-12-26) mentioned in the application

D3: US-A-3 867 382 (SURYANARAYANA) 18 February 1975 (1975-02-18) mentioned in the application.

D1 discloses a method for producing cyanuric chloride from which the subject matter of Claims 1-5 differs in that activated carbon with a certain pore space and pore diameter is used.

D2 discloses a mixture of activated carbon and of less effective or non-catalytically effective diluents. D3 discloses untreated activated carbon produced from coconut shells. The subject matter of Claims 1-5 therefore is novel (PCT Article 33(2)).

The problem to be solved by the present invention is showing an improved method for producing cyanuric chloride

by trimerization of chlorine cyanide, with the improvement being a lower specific catalyst consumption. It is regarded as unexpected that the effective pore space of the present method leads to a decreased specific catalyst consumption (see Tables 1 and 2). PCT Article 33(3) is therefore regarded as being met.

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM
GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

REC'D 11 APR 2001

WIPO PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



T 16

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 990040 CY	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/02013	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 08/03/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 22/04/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07D251/28		
Anmelder DEGUSSA [HÜLS] AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).
Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 30/08/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 09.04.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Scruton-Evans, I Tel. Nr. +49 89 2399 8272 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-12 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-5 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/02013

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-5
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-5
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-5
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

Die folgenden, im Recherchenbericht aufgeführten Dokumente, werden als relevant angesehen;

- D1: US-A-3 312 697 (J.RIETHMANN) 4. April 1967 (1967-04-04) in der Anmeldung erwähnt
- D2: US-A-3 707 544 (SURYANARAYANA) 26. Dezember 1972 (1972-12-26) in der Anmeldung erwähnt
- D3: US-A-3 867 382 (SURYANARAYANA) 18. Februar 1975 (1975-02-18) in der Anmeldung erwähnt

Das Dokument D1 offenbart ein Verfahren zur Herstellung von Cyanurchlorid von dem sich der Gegenstand den Ansprüche 1-5 dadurch unterscheidet, daß eine Aktivkohle die ein bestimmtes Porenvolumen und Porendurchmesser hat, verwendet wird.

Das Dokument D2 offenbart einem Gemisch aus einer Aktivkohle und einem weniger oder nicht katalytisch wirksamen festen Verdünnungsmittel. Das Dokument D3 offenbart eine aus Kokosnußschalen erzeugte unbehandelte Aktivkohle. Der Gegenstand des Anspruchs 1-5 ist somit neu (Artikel 33 (2) PCT).

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist ein verbessertes Verfahren zur Herstellung von Cyanurchlorid durch Trimerisierung von Chlorcyan aufzuzeigen, wobei die Verbesserung in einem verminderten spezifischen Katalysatorverbrauch besteht. Es wird als unerwartet angesehen, daß das effektive Porenvolumen des vorliegenden Verfahrens zu einem verminderten spezifischen Katalysatorverbrauch führt (siehe Tabelle 1 und Tabelle 2). Artikel 33(3) PCT wird deshalb als erfüllt angesehen.

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 990040 CY	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/02013	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 08/03/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 22/04/1999
Anmelder DEGUSSA-HÜLS AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 2 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. _____

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☒ keine der Abb.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C07D251/28

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C07D B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US 3 312 697 A (J.RIETHMANN) 4. April 1967 (1967-04-04) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ---	1-5
A	US 3 707 544 A (SURYANARAYANA) 26. Dezember 1972 (1972-12-26) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ---	1-5
Y	US 3 867 382 A (SURYANARAYANA) 18. Februar 1975 (1975-02-18) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument -----	1-5



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

° Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

14. Juni 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

21/06/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Scruton-Evans, I

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/02013

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
US 3312697 A			NONE		
US 3707544 A		26-12-1972	CA	981263 A	06-01-1976
			US	3789021 A	29-01-1974
US 3867382 A		18-02-1975	CA	981674 A	13-01-1976

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : C07D 251/28	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/64879 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 2. November 2000 (02.11.00)
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/02013</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 8. März 2000 (08.03.00)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 199 18 245.0 22. April 1999 (22.04.99) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): DE-GUSSA-HÜLS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-60287 Frankfurt am Main (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BÖRNER, Walter [DE/DE]; Lessingstrasse 12, D-63579 Freigericht (DE). MARQUARDT, Ralph [DE/DE]; Schwarzbürgstrasse 22, D-60318 Frankfurt am Main (DE). SCHAUHOFF, Stephanie [DE/DE]; Bergerstrasse 152, D-60385 Frankfurt am Main (DE). SCHICK, Christine [DE/DE]; Bettinastrasse 66, D-63067 Offenbach (DE). VANHEERTUM, Rudolf [BE/DE]; Ostring 35, D-63796 Kahl (DE).</p>	<p>(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht.</p>	
<p>(54) Title: METHOD OF PRODUCING CYANURIC CHLORIDE</p> <p>(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON CYANURCHLORID</p> <p>(57) Abstract</p> <p>The invention relates to a method of producing cyanuric chloride by trimerizing chlorocyan at a temperature of at least 250 °C on washed activated carbon as the catalyst. The service life of the catalyst can be improved by using an activated coal with an effective pore volume V_{eff} of equal or greater 0.17 ml/g, with V_{eff} being the result of pores with a pore diameter ranging from 0.5 to 7 nm.</p> <p>(57) Zusammenfassung</p> <p>Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Cyanurchlorid durch Trimerisierung von Chlorcyan an einer gewaschenen Aktivkohle als Katalysator bei mindestens 250 °C. Die Standzeit des Katalysators lässt sich erhöhen, indem eine Aktivkohle mit einem effektiven Porenvolumen V_{eff} von gleich oder grösser 0,17 ml/g verwendet wird, wobei V_{eff} aus Poren mit einem Porendurchmesser im Bereich von 0,5 bis 7 nm gebildet werden.</p>		

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidsschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Verfahren zur Herstellung von Cyanurchlorid

Beschreibung

- 5 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Cyanurchlorid durch Trimerisierung von Chlorcyan bei einer Temperatur oberhalb 200 °C an einem Aktivkohlekatalysator. Das erfindungsgemäße Verfahren führt zu einem verminderten spezifischen Katalysatorverbrauch.
- 10 Cyanurchlorid wird großtechnisch hergestellt durch Chlorierung von Cyanwasserstoff unter Bildung von Chlorcyan und Trimerisierung des Chlorcyans zu Cyanurchlorid - siehe Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry Vol. A8, 5th ed. (1987), 196-197. Die Trimerisierung erfolgt in der
- 15 Gasphase bei einer Temperatur oberhalb 200 °C, insbesondere im Bereich von etwa 300 bis 450 °C, an einem Aktivkohlekatalysator. Aufgrund der Exothermie der Trimerisierungsreaktion bildet sich im kontinuierlichen Betrieb ein Temperaturprofil entlang der Längsachse des
- 20 Reaktors; es kommt zur Ausbildung eines sogenannten hot-spot, dessen Temperaturmaximum vom Durchsatz abhängt und mit wachsendem Durchsatz ansteigt. Es ist bekannt, daß der Aktivkohlekatalysator in Abhängigkeit von den Betriebsbedingungen, dem Durchsatz und der
- 25 Aktivkohlequalität desaktiviert. Die Desaktivierung macht sich dadurch bemerkbar, daß die Reaktionszone und damit das Temperaturmaximum entlang der Längsachse des Katalysators wandert.
- Aufgrund der Desaktivierung des Katalysators muß dieser
- 30 periodisch ausgetauscht oder anderweitig aktiviert werden. Die Wirtschaftlichkeit des Cyanurchloridverfahrens hängt

maßgeblich von der Standzeit des Katalysators ab, da nicht nur die Katalysatorkosten, sondern auch die Anlagenstillstandskosten berücksichtigt werden müssen. Hinzu kommt, daß mit zunehmender Desaktivierung des

5 Katalysators in erhöhtem Umfang Nebenprodukte, wie beispielsweise Cyamelurchlorid, ausgetragen werden und damit einen erhöhten Reinigungsaufwand des Cyanurchlorids erforderlich machen.

Im Hinblick auf die aufgezeigten Probleme war die Fachwelt schon lange daran interessiert, Aktivkohlekatalysatoren mit

10 erhöhter Standzeit aufzufinden und/oder die Betriebsbedingungen so zu variieren, daß die Standzeit erhöht werden kann.

Das US-Patent 3,312,697 lehrt demgemäß ein Verfahren zur

15 Herstellung von Cyanurchlorid unter Einsatz eines Aktivkohlekatalysators mit einer spezifischen Oberfläche von über 1000 m²/g, wobei der Aktivkohlekatalysator durch eine Behandlung mit Säuren und/oder Alkalien und eine nachgeschaltete Wäsche mit Wasser aktiviert wurde. Durch

20 die genannte Behandlung werden anorganische Bestandteile, wie Oxide, Hydroxide und Salze von der Standzeit des Katalysators mindernden Metallen, wie Li, Mg, Ce, Ti, V, Mn, Fe, Ni, Pt, Cu, Zn, Cd, Sn, Pb und Bi, aus der Aktivkohle herausgelöst. Die Standzeit des Katalysators

25 wird in diesem Verfahren ferner dadurch erhöht, daß dem Chlorcyan 0,5 bis 10 Gew.-% Chlor und/oder Phosgen zugesetzt werden.

Im Verfahren gemäß US-Patent 3,707,544 wird die Standzeit dadurch erhöht, daß der Trimerisierungsreaktor mit einem

30 Gemisch aus einer Aktivkohle und einem weniger oder nicht katalytisch wirksamen festen Verdünnungsmittel gemischt ist. Nachteilig an diesem Verfahren ist, daß die Raum-Zeit-Ausbeute gemindert und der Aufwand zur Entsorgung des

deaktivierten Katalysators vor allem dann erhöht wird, wenn es sich bei dem Verdünnungsmittel um ein nicht brennbares Material handelt.

- Im Verfahren des US-Patents 3,867,382 wird anstelle einer
5 säuregewaschenen Aktivkohle eine aus Kokosnußschalen
erzeugte unbehandelte Aktivkohle verwendet. Diese
Aktivkohle weist eine innere Oberfläche von 1200 bis 1500
 m^2/g , ein Mikroporenvolumen von mindestens $0,7 \text{ cm}^3/\text{g}$ und
einen Aschegehalt von unter 4 Gew.-% auf. Aufgrund der
10 pflanzlichen Herkunft des Rohstoffs für diese Aktivkohle
weist diese einen geringen Schwermetallgehalt auf und macht
eine Säurewäsche überflüssig. Dem Dokument läßt sich nicht
entnehmen, wie die Mikroporen definiert sind, d. h., ob es
sich um alle inneren Poren oder um Mikroporen mit genau
15 definierten Grenzwerten für die Porendurchmesser handelt.
Ein erheblicher Nachteil der beispielhaft verwendeten
Aktivkohle besteht darin, daß die Schüttdichte und damit
die auf das Reaktorvolumen bezogene Einsatzmenge sehr hoch
ist und damit die Wirtschaftlichkeit mindert.
- 20 E. Wang et al. lehren in J. Beijing Inst. Chem. Technol. 20
(1993) 1, 55-58, daß bei der Auswahl der Katalysatoren für
die Chlorcyantrimerisierung verschiedene Parameter
berücksichtigt werden müssen, so der Aschegehalt, der
Eisengehalt, die spezifische Oberfläche und die
25 Porengrößenverteilung. Die Auswahl einer geeigneten
Aktivkohle wird dadurch erschwert, daß sich die Parameter
wechselseitig beeinflussen können. Aus diesem Dokument
folgt, daß es vorteilhaft ist, eine Kohle zu verwenden,
welche eine möglichst hohe spezifische Oberfläche und daher
30 zahlreiche kleine Poren aufweist. Letztere tragen dazu bei,
daß die Reaktion an verhältnismäßig zahlreichen aktiven
Zentren ablaufen kann. Ausweislich der Abbildungen zur
Porengrößenverteilung von zwei unterschiedlichen

Aktivkohlen wird nahegelegt, daß die Poren insbesondere einen Durchmesser von kleiner 2 nm aufweisen sollen. Dem Dokument läßt sich jedoch kein Hinweis entnehmen, in welcher Weise die einzelnen Parameter die Standzeit des Katalysators in einer für den kontinuierlichen Betrieb ausgelegten Produktionsanlage beeinflussen.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist demgemäß, ein verbessertes Verfahren zur Herstellung von Cyanurchlorid durch Trimerisierung von Chlorcyan aufzuzeigen, wobei die Verbesserung in einem verminderten spezifischen Katalysatorverbrauch besteht. Gemäß einer weiteren Aufgabe sollten die Kriterien aufgezeigt werden, anhand derer der Fachmann einen Aktivkohlekatalysator mit verlängerter Standzeit für die gattungsgemäße Reaktion auswählen kann. Weitere Aufgaben lassen sich der nachfolgenden Beschreibung des erfindungsgemäßen Verfahrens entnehmen.

Gefunden wurde ein Verfahren zur Herstellung von Cyanurchlorid, umfassend Trimerisierung von Chlorcyan in Gegenwart einer gewaschenen Aktivkohle mit einer BET-Oberfläche von mindestens 1000 m²/g und einem Fe-Gehalt (berechnet als Fe₂O₃) von weniger als 0,15 Gew.-% bei einer Temperatur von mindestens 250 °C, das dadurch gekennzeichnet ist, daß man eine Aktivkohle mit einem effektiven Porenvolumen V_{eff} von gleich oder größer 0,17 ml/g verwendet, wobei V_{eff} aus Poren mit einem Porendurchmesser im Bereich von 0,5 bis 7 nm gebildet werden. Die Unteransprüche richten sich auf bevorzugte Ausführungsformen des Verfahrens.

Es wurde festgestellt, daß die Trimerisierung von Chlorcyan nur in solchen Poren befriedigend abläuft, deren Porendurchmesser im Bereich von 0,5 bis 7 nm, insbesondere 0,5 bis 5 nm liegt; das Porenvolumen dieser Poren soll mindestens 0,17 ml/g betragen. Obgleich die Porenverteilung

- von Aktivkohlen herstellungsbedingt sehr unterschiedlich sein kann, ist es möglich, das für die Umsetzung erforderliche effektive Porenvolumen V_{eff} aus der Summe eines Volumeninkrements für die Mikroporen mit einem Porendurchmesser von < 2 nm und einem Volumeninkrement der Mesoporen mit einem Porendurchmesser von 2 bis 30 nm zu definieren. Das effektive Porenvolumen kann demgemäß als lineare Funktion dargestellt werden: $V_{\text{eff}} = a \cdot V_{\text{mikro}} + b \cdot V_{\text{meso}}$. Es wurde ferner gefunden, daß die Funktion
- 5 $V_{\text{eff}} = 0,25 \cdot 0,50 V_{\text{mikro}} + V_{\text{meso}}$ ein geeignetes Auswahlkriterium für eine wirksame Aktivkohle mit einer langen Standzeit ist. Das Mikro- und Mesoporenvolumen wird wie folgt bestimmt:
- 10

- Das Mikroporenvolumen wird aus der Stickstoff-
- 15 Adsorptionsisotherme bei der Temperatur des flüssigen Stickstoffs durch Vergleich mit einer Standardisotherme nach dem t-plot-Verfahren von De Boer (vgl. De Boer et al. in J. of Colloid an Interface Science 21, 405-44 (1966)) nach DIN 66135, Teil 2 (Entwurf - April 1998) bestimmt.
- 20 Die Bestimmung des Mesoporenvolumens und der Porenverteilung erfolgt aus der Stickstoff-Desorptionsisotherme nach Barrett, Joyner und Halenda gemäß DIN 66134 (Februar 1998). Die zur Bestimmung von V_{mikro} und V_{meso} eingesetzte Probe wird vor der Messung 1 h bei 200 °C
- 25 im Vakuum (kleiner 1,3 Pa) behandelt. Die Messung erfolgt beispielsweise in einem Gerät "ASAP 2400" der Firma Micromeritics, Norcross, Ga. (US). Bei der erfindungsgemäßen Definition des V_{meso} werden nur Mesoporen mit einem Durchmesser von 2 bis 30 nm erfaßt.
- 30 Eine besonders hohe Steigerung der Standzeit der Aktivkohle im gattungsgemäßen Verfahren wird dann erzielt, wenn V_{eff} mindestens 0,2 ml/g beträgt. Anhand der Untersuchung zahlreicher unterschiedlicher Aktivkohlen wurde

festgestellt, daß ein Maximum des wie oben definierten effektiven Porenvolumens einem Minimum des spezifischen Katalysatorverbrauchs entspricht. Extrem mesoporöse Aktivkohlen als auch extrem mikroporöse Aktivkohlen weisen
5 im mittleren Porenbereich, also im Bereich zwischen 0,5 und 5 nm ein zu geringes Porenvolumen auf, so daß der spezifische Katalysatorverbrauch wesentlich höher ist als bei den erfindungsgemäß zu verwendenden Katalysatoren.

Ein weiteres Merkmal der erfindungsgemäß zu verwendenden
10 Aktivkohlen ist die spezifische Oberfläche (BET-Oberfläche), welche mindestens 1000 m²/g, vorzugsweise mindestens 1200 m²/g, beträgt. Eine hohe Oberfläche ist demgemäß zwar vorteilhaft, sie ist aber kein Kriterium, das einen Rückschluß auf die Katalysatorstandzeit zuläßt. So
15 zeigen unterschiedliche Aktivkohlen mit nahezu gleicher spezifischer Oberfläche sehr große Unterschiede in ihrer Desaktivierungsgeschwindigkeit.

Im Hinblick auf den negativen Einfluß eines hohen Eisengehalts der Aktivkohle sollte dieser, berechnet als
20 Fe₂O₃, unter 0,15 vorzugsweise um/unter 0,1 Gew.-% betragen. Obgleich auch ungewaschene Aktivkohlen katalytisch wirksam sind, wird im erfindungsgemäßen Verfahren eine gewaschene, insbesondere eine
säuregewaschene Aktivkohle verwendet, weil die Wäsche
25 einerseits eine Möglichkeit darstellt, den Eisen- und übrigen Schwermetallgehalt zu reduzieren und damit die Nebenproduktbildung zu minimieren und andererseits hierdurch das für die Reaktion wichtige Porenvolumen erhöht wird. Im Hinblick auf die Minimierung des spezifischen
30 Katalysatorverbrauchs ist es zudem von Vorteil, eine solche Kohle zu verwenden, deren Schüttdichte gleich oder kleiner 420 g/l beträgt. Bei ausreichender Wirksamkeit des Aktivkohlekatalysators und einem effektiven Porenvolumen

von $> 0,17$ ml/g, vorzugsweise gleich oder $> 0,20$ ml/g ist es vorteilhaft, wenn die Schüttdichte der Aktivkohle möglichst niedrig ist. Zweckmäßigerweise wird in derartigen Fällen eine Aktivkohle verwendet, deren Schüttdichte gleich 5 oder < 420 g/l, vorzugsweise < 390 g/cm³ ist. Aus der Figur 1, welche die Ergebnisse zahlreicher Untersuchungen zusammenfasst - siehe Beispiele - wird deutlich, in welchem unvorhergesehenen Maße der spezifische Katalysatorverbrauch a (kg Katalysator pro t umgesetztes Chlorcyan) beim Einsatz 10 einer gewaschenen Aktivkohle mit einer BET-Oberfläche von mindestens 1000 m²/g und einem Fe-Gehalt von weniger als 0,15 Gew.-% (berechnet als Fe₂O₃) der spezifische Katalysatorverbrauch vom erfindungsgemäß definierten effektiven Porenvolumen abhängt. Der spezifische 15 Katalysatorverbrauch ist insbesondere dann gering, wenn sowohl die Desaktivierungsgeschwindigkeit (die Bestimmungsmethode ist den Beispielen zu entnehmen) als auch gleichzeitig die Schüttdichte des Katalysators möglichst niedrig ist.

20

Beispiele

Die Untersuchungen zur Ermittlung des spezifischen Katalysatorverbrauchs in der Reaktionszone bei der Trimerisierung von Chlorcyan zu Cyanurchlorid wurden in 25 einem Rohrreaktor, der mit dem zu untersuchenden Aktivkohlekatalysator gefüllt war, durchgeführt. Der Rohrreaktor wurde mit einem Wärmeträger gekühlt; die Kühlmitteltemperatur wurde auf 280 °C gehalten. Der Versuchsreaktor war parallel zu einem Betriebsreaktor 30 geschaltet. Das entstehende gasförmige Cyanurchlorid wurde nach Verlassen des Reaktors kondensiert und das flüssige Produkt zur Überführung in den festen Aggregatzustand in gekühlten Kammern versprüht.

Das Verhältnis der Reaktorlänge zum Reaktorquerschnitt betrug 39. Im kontinuierlichen Betrieb bildete sich ein Temperaturprofil entlang der Längsachse des Reaktors aus. Dieses Profil umfasst eine Erwärmungszone, eine

5 Reaktionszone und eine Abkühlungszone. Das Maximum der Reaktionszone, dessen Temperatur mit wachsendem Durchsatz ansteigt, wandert mit wachsender Katalysator-desaktivierung in Strömungsrichtung voran. Die Desaktivierungs-

10 geschwindigkeit (u_{Desakt}) wurde bestimmt, indem aus entlang des Reaktors angeordneten Temperaturmeßstellen zeitabhängige Temperaturprofile erstellt wurden.

Die Figur 2 zeigt, daß mit zunehmender Betriebsdauer der hot-spot der Reaktionszone durch das Raster der hintereinander angeordneten Meßstellen wandert. Die

15 eigentliche Bestimmung der Desaktivierungsgeschwindigkeit wurde nach einer sogenannten Katalysatorvordesaktivierung begonnen - zu diesem Zeitpunkt baute sich in der Nähe des Reaktoreingangs der "hot-spot" auf. Die Katalysatorvordesaktivierung dauerte bei einem Durchsatz

20 von 1,1 kg Chlorcyan pro Stunde etwa 12 Stunden. Figur 2 zeigt einen typischen Verlauf der Desaktivierung. Aus dem Abstand der Temperaturmeßstellen und der mittleren Chlorcyanmenge (gemessen von Maximum zu Maximum) läßt sich die Desaktivierungsgeschwindigkeit in cm/t ClCN bestimmen.

25 Der spezifische Katalysatorverbrauch in der Reaktionszone läßt sich aus der Desaktivierungsgeschwindigkeit ($v_{\text{desakt.}}$), der Reaktorgeometrie (Querschnittsfläche F) sowie der Schüttdichte ρ nach folgender Gleichung ermitteln:

$$30 \quad a \left[\frac{\text{kg Kat}}{\text{t ClCN}} \right] = u_{\text{Desakt}} \left[\frac{\text{cm}}{\text{t ClCN}} \right] \cdot F [\text{cm}^2] \cdot \rho \left[\frac{\text{kg}}{\text{m}^3} \right]$$

Eingesetzt wurden die in der Tabelle 1 charakterisierten Aktivkohlen.

Tabelle 1: Eingesetzte Aktivkohlekatalysatoren

Katalysator (Nr.)	Rohstoff	Wäsche	Asche- gehalt (Gew.-%)	Fe-Gehalt (als Fe ₂ O ₃) (Gew.-%)	Schütt- dichte (g/l)	BET (m ² /g)	Porenvolumen (cm ³ /g)		
							V _{mikro}	V _{meso}	V _{eff} *)
K1	Torf	+	1,67	0,00	403	1016	0,38	0,18	0,185
K2	Torf	+	2,45	0,07	346	1453	0,63	0,11	0,213
K3	Steinkoh- le	+	2,24	0,03	410	1217	0,51	0,17	0,212
K4	Holz	+	2,18	0,28	375	1523	0,64	0,09	0,205
K5	Kiefer	-	8,01	0,16	406	1290	0,58	0,11	0,200
K6	Kokosnuß	+	0,42	0,00	373	1459	0,59	0,04	0,157
K7	Torf	+	2,46	0,07	434	1213	0,50	0,08	0,165
K8	Kokosnuß	+	1,66	0,01	430	1110	0,45	0,07	0,147

*) V_{eff} = 0,25 V_{mikro} + 0,5 V_{meso}

10

Tabelle 2 zeigt die Desaktivierungsgeschwindigkeit u und den spezifischen Katalysatorverbrauch a in der Reaktionszone unter Verwendung der in Tabelle 1 angegebenen Aktivkohlen, wobei in allen Versuchen der ClCN-Durchsatz 5 4,4 kg pro Stunde betrug.

Tabelle 2: Desaktivierungsgeschwindigkeit V und spezifischer Katalysatorverbrauch a in der Reaktionszone

10

Katalysator Nr.	u (cm/t ClCN)	a kg Kat./t ClCN
K1	29	1,05
K2	21	0,65
K3	25	0,92
K4 *)	35	1,18
K5 *)	40	1,46
K6 *)	35	1,18
K7 *)	28	1,09

Temperatur des Wärmeträgers 280 °C

*) nicht erfindungsgemäßer Aktivkohlekatalysator

- Die Versuche zeigen, daß der spezifische Katalysatorverbrauch in der Reaktionszone maßgeblich vom effektiven Porenvolumen und der Schüttdichte des Katalysators abhängt. Durch einen verminderten
- 5 Katalysatorverbrauch werden nicht nur die Kosten für den Katalysator vermindert, sondern gleichzeitig wird die Verfügbarkeit der Anlage durch verminderte Stillstandszeiten erhöht, wodurch die Wirtschaftlichkeit des Verfahrens gleichfalls ansteigt.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Cyanurchlorid, umfassend Trimerisierung von Chlorcyan in Gegenwart einer gewaschenen Aktivkohle mit einer BET-Oberfläche von
5 mindestens 1000 m²/g und einem Fe-Gehalt von weniger als 0,15 Gew.-% (berechnet als Fe₂O₃) bei einer Temperatur von mindestens 250 °C, dadurch gekennzeichnet, daß man eine Aktivkohle mit einem effektiven
10 Porenvolumen V_{eff} von gleich oder größer 0,17 ml/g verwendet, wobei V_{eff} aus Poren mit einem Porendurchmesser im Bereich von 0,5 bis 7 nm gebildet werden.
2. Verfahren nach Anspruch 1,
15 dadurch gekennzeichnet, daß man eine Aktivkohle verwendet, deren effektives Porenvolumen V_{eff} gebildet ist aus der Summe $V_{eff} = 0,25 \cdot V_{mikro} + 0,5 V_{meso}$, wobei V_{mikro} Poren mit einem Durchmesser von kleiner 2 nm und V_{meso} Poren mit
20 einem Durchmesser von 2 bis 30 nm umfaßt.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß V_{eff} der verwendeten Aktivkohle mindestens 0,2 ml/g beträgt.
- 25 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die zu verwendende Aktivkohle eine Schüttdichte von gleich oder kleiner 420 g/l aufweist.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4,
dadurch gekennzeichnet,
daß die zu verwendende Aktivkohle eine BET-Oberfläche
von mindestens $1200 \text{ m}^2/\text{g}$ aufweist und V_{eff} mindestens
5 0,2 ml/g beträgt.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C07D251/28

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07D B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US 3 312 697 A (J.RIETHMANN) 4. April 1967 (1967-04-04) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ---	1-5
A	US 3 707 544 A (SURYANARAYANA) 26. Dezember 1972 (1972-12-26) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ---	1-5
Y	US 3 867 382 A (SURYANARAYANA) 18. Februar 1975 (1975-02-18) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument -----	1-5

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

° Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

14. Juni 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

21/06/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Scruton-Evans, I

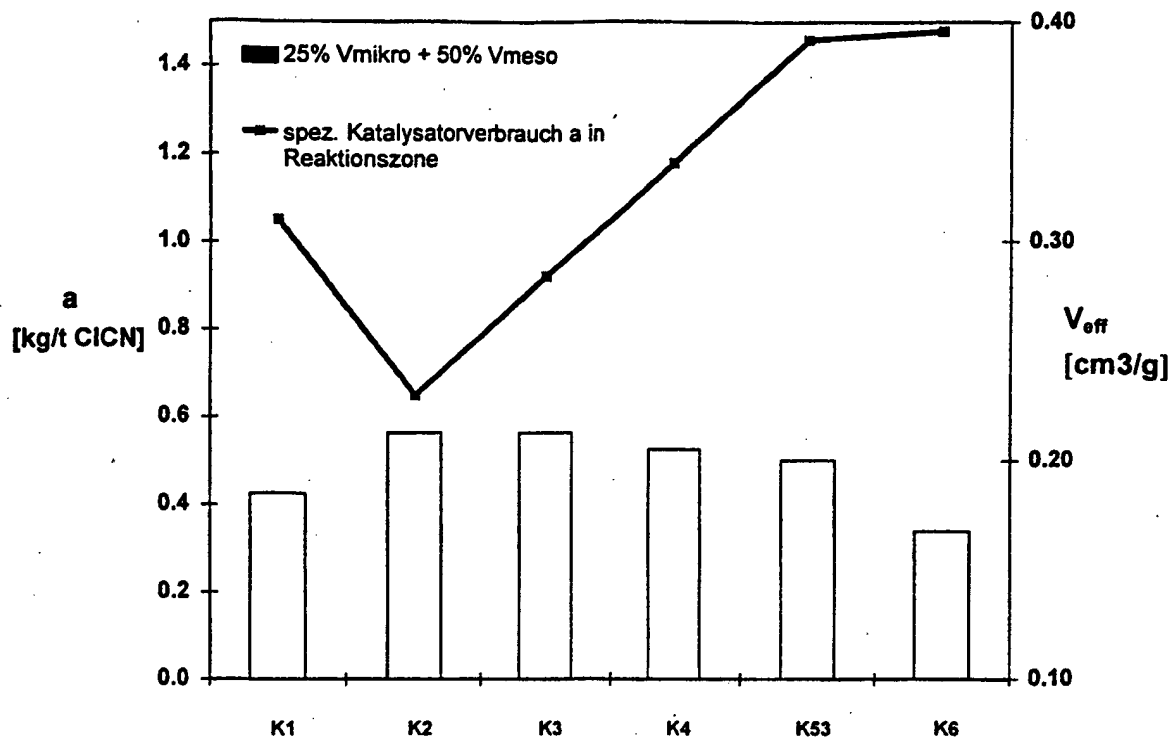
INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02013

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 3312697 A		KEINE	
US 3707544 A	26-12-1972	CA 981263 A US 3789021 A	06-01-1976 29-01-1974
US 3867382 A	18-02-1975	CA 981674 A	13-01-1976



5 Fig. 1: Spezifischer Katalysatorverbrauch a in Abhängigkeit vom effektiven Porenvolumen

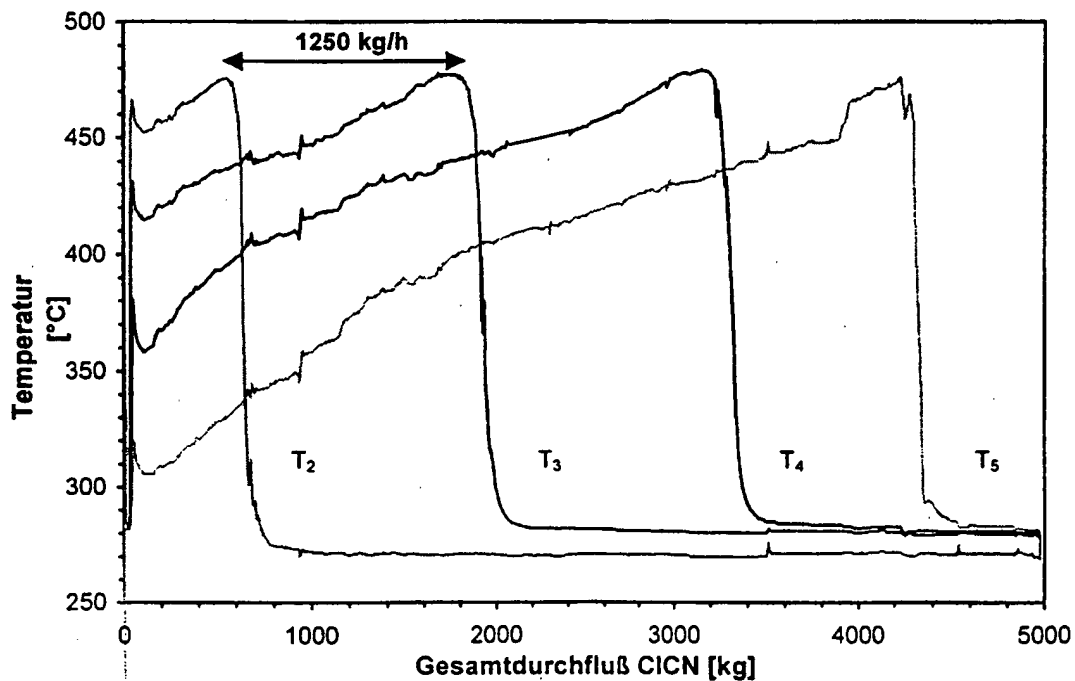


Fig. 2: Wanderung des hot-spots durch den Reaktor.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C07D251/28

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C07D B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US 3 312 697 A (J. RIETHMANN) 4. April 1967 (1967-04-04) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ---	1-5
A	US 3 707 544 A (SURYANARAYANA) 26. Dezember 1972 (1972-12-26) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ---	1-5
Y	US 3 867 382 A (SURYANARAYANA) 18. Februar 1975 (1975-02-18) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument -----	1-5

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

14. Juni 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

21/06/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Scruton-Evans, I

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02013

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 3312697 A		KEINE	
US 3707544 A	26-12-1972	CA 981263 A US 3789021 A	06-01-1976 29-01-1974
US 3867382 A	18-02-1975	CA 981674 A	13-01-1976